

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-100161

(43)公開日 平成8年(1996)4月16日

(51)Int.Cl.\*

C 09 J 133/10

7/02

133/14

識別記号

府内整理番号

F I

技術表示箇所

J DD

J JW

J DE

審査請求 未請求 請求項の数8 O.L (全7頁)

(21)出願番号 特願平6-237316

(22)出願日 平成6年(1994)9月30日

(71)出願人 000003964

日東電工株式会社

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号

(72)発明者 小島 賢

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東  
電工株式会社内

(72)発明者 佐竹 正之

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東  
電工株式会社内

(72)発明者 小島 勝秀

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東  
電工株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 粘着剤組成物および該組成物を用いてなる粘着シート類

(57)【要約】

【目的】 接着力や凝集力を安定的に示す粘着剤組成物、およびこの組成物を用いてなる粘着シート類を提供する。

【構成】 炭素数2~14のアルキル基を有する(メタ)アクリル酸アルキルエステル(a)に、末端にカルボキシル基またはヒドロキシル基を有し、総炭素数が3~14のアルキル基をエステル側鎖とする(メタ)アクリル酸アルキルエ斯特爾(b)0.05~80重量%共重合する。特に、(b)単量体のアルキル基の炭素数が(a)単量体よりも1個少ないか、もしくは同数以上とすることによって、官能基が本来有する作用効果を最大限有効に發揮させることができる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記単量体(a)および(b)を必須成分として共重合してなる粘着剤組成物。

(a) 総炭素数が2~14であるアルキル基をエステル側鎖とする(メタ)アクリル酸アルキルエステル20~99.95重量%。

(b) 末端にカルボキシル基またはヒドロキシル基を有し、総炭素数が3~14であるアルキル基をエステル側鎖とする(メタ)アクリル酸アルキルエステル0.05~80重量%。

【請求項2】 単量体(a)および単量体(b)のアルキル基が、直鎖アルキル基である請求項1記載の粘着剤組成物。

【請求項3】 単量体(b)のアルキル基の炭素数が、単量体(a)のアルキル基の炭素数よりも1個少ないか、もしくは同数以上である請求項2記載の粘着剤組成物。

【請求項4】 単量体(a)および単量体(b)の少なくとも一方のアルキル基が、分岐鎖アルキル基である請求項1記載の粘着剤組成物。

【請求項5】 単量体(b)の官能基を有するアルキル直鎖の炭素数が、単量体(a)のアルキル基の最も長いアルキル直鎖の炭素数よりも1個少ないか、もしくは同数以上である請求項4記載の粘着剤組成物。

【請求項6】 さらに他の共重合性単量体(c)を全単量体量の30重量%以下の範囲で共重合させてなる請求項1記載の粘着剤組成物。

【請求項7】 支持体の少なくとも片面に、請求項1記載の粘着剤組成物から得られる粘着剤層を形成してなる粘着シート類。

【請求項8】 粘着剤層が架橋処理されている請求項7記載の粘着シート類。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は粘着剤組成物、およびこれを用いてなる粘着テープや粘着シートなどの粘着シート類に関し、詳しくは粘着剤組成物を得るために用いた単量体末端の官能基が有する作用効果を最大限に活用することができる粘着剤組成物、および粘着シート類に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 従来から、紙やプラスチックフィルムなどからなる支持体の片面もしくは両面に粘着剤層を設けてなる粘着テープや粘着シート(以下、粘着シート類という)が各種用途に汎用されている。粘着剤層を形成するための粘着剤組成物も、その用途に応じて多種多様であって、天然ゴム系や合成ゴム系、アクリル系、ビニルエーテル系、シリコーン系などが一般的に用いられている。これらの粘着剤のうち、アクリル系の粘着剤は接着力や粘着力(タック)、凝集力などの粘着特性、耐候性

や耐溶剤性、耐熱性などの耐劣化特性に優れているために、代表的な粘着剤の一つとなっている。

【0003】 アクリル系の粘着剤は一般に、粘着性を付与するためガラス転移温度の低い(メタ)アクリル酸アルキルエステルを主成分単量体とし、これに官能基を有する単量体などの共重合性単量体を共重合させているが、小さな応力でも長時間にわたって応力を受けると、ずれや破壊を生じやすいという凝集力不足の問題や、高温下での接着特性の不足、経日での接着力の変動など、用途によっては未だ改良すべき点を多く有するものである。

【0004】 アクリル系粘着剤は上記のように共重合反応によって調製することができるので、カルボキシル基やヒドロキシル基などの官能基を有する極性単量体を共重合したり、ジ(メタ)アクリレートやグリシジル(メタ)アクリレートなどの多官能性の内部架橋用単量体を共重合することにより、接着性や凝集性を改善することを比較的簡単に見えるものである。

【0005】 しかしながら、このような極性単量体を共重合すると、得られる粘着剤(共重合体)のガラス転移温度が上昇して粘着性、特に初期接着性(タック)が低下しやすくなる。さらに、ガラス転移温度の上昇に伴い低温下での接着特性も低下するおそれがあり、このような極性単量体の共重合比率にも限界がある。また、後架橋して粘着剤の凝集性を向上させるために、共重合体および架橋剤を任意の溶剤に溶解してなる溶液を塗工、乾燥して粘着シート類とするが、架橋点となるべき共重合体中の官能基が共重合体の分子鎮内に取り込まれると速やかな架橋反応が起こらず、経時的に架橋反応が進行することによって接着特性が変化してしまう。従って、品質面で安定な粘着シート類を得るためにには、充分なエンジニアリング操作が必要となり、生産性の向上の面からは決して良好なものとは云えないものである。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の目的は、上記従来のアクリル系粘着剤組成物が有する課題を解決し、優れた接着力や凝集力を安定的に示す粘着剤組成物を提供することにある。

【0007】 また、本発明の他の目的は、上記粘着剤組成物を用いてなる粘着シート類を提供することにある。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】 本発明者らは、上記目的を達成するために検討を重ねた結果、主として粘着性付与成分としての(メタ)アクリル酸アルキルエステルと、共重合する単量体としての特定の側鎖を有する官能性(メタ)アクリル酸アルキルエステルを用いることによって、共重合体中の官能基を有効に作用させ、接着性および凝集性に優れた粘着剤組成物を得ることができるを見い出し、本発明を完成するに至った。

【0009】 即ち、本発明は下記単量体(a)および

(b) を必須成分として共重合してなる粘着剤組成物に関するものである。

(a) 総炭素数が2~14であるアルキル基をエステル側鎖とする(メタ)アクリル酸アルキルエステル20~99.95重量%。

【0010】(b) 末端にカルボキシル基またはヒドロキシル基を有し、総炭素数が3~14であるアルキル基をエステル側鎖とする(メタ)アクリル酸アルキルエステル0.05~80重量%。

【0011】特に、上記条件において、単量体(a)および単量体(b)のアルキル基が、直鎖アルキル基である場合には、単量体(b)のアルキル基の炭素数が、単量体(a)のアルキル基の炭素数よりも1個少ないと、もしくは同数以上であることが好ましい。

【0012】また、上記条件において単量体(a)および単量体(b)の少なくとも一方のアルキル基が、分岐鎖アルキル基である場合には、単量体(b)のアルキル基の最も長いアルキル直鎖の炭素数が、単量体(a)の官能基を有するアルキル直鎖の炭素数よりも1個少ないと、もしくは同数以上であることが好ましい。

【0013】さらに、本発明は支持体の少なくとも片面に、上記粘着剤組成物から得られる粘着剤層を形成してなる粘着シート類に関するものである。

【0014】本発明の粘着剤組成物において用いる単量体(a)は、エステル側鎖として総炭素数が2~14であるアルキル基を有する(メタ)アクリル酸アルキルエステルであって、得られる組成物に主として粘着特性を付与する成分である。エステル側鎖としてのアルキル基の総炭素数は、初期接着性や粘着性、接着性の点からは2~14とする必要がある。具体的には、(メタ)アクリル酸エチルエステル、(メタ)アクリル酸プロピルエステル、(メタ)アクリル酸ブチルエステル、(メタ)アクリル酸ベンチルエステル、(メタ)アクリル酸ヘキシルエステル、(メタ)アクリル酸ヘプチルエステル、(メタ)アクリル酸オクチルエステル、(メタ)アクリル酸ノニルエステル、(メタ)アクリル酸デシルエステル、(メタ)アクリル酸ウンデシルエステル、(メタ)アクリル酸ドデシルエステル、(メタ)アクリル酸トリデシルエステル、(メタ)アクリル酸テトラデシルエステルが挙げられ、これらは直鎖エステルでも、構造異性体としての分岐鎖エステルであってもよく、一種もしくは二種以上併用して用いることができる。

【0015】上記単量体(a)は粘着剤としての特性の点からは、必須成分として全単量体中に20~99.95重量%、好ましくは30~99.95重量%の範囲で共重合される。

【0016】一方、単量体(b)としては、末端にカルボキシル基またはヒドロキシル基を有し、かつ総炭素数が3~14であるアルキル基をエステル側鎖とする(メタ)アクリル酸アルキルエステルが用いられる。この單

量体(b)は上記単量体(a)と同様にエステル側鎖としてアルキル基を有するものであるが、側鎖の末端に官能基としてのカルボキシル基またはヒドロキシル基を有するものであり、末端の官能基によって極性が高まり接着性や凝集性などの接着特性が向上する。しかも、得られる共重合体の主鎖となるアクリロイル基と末端の官能基との間のメチレン鎖がスペーサー的に作用して共重合体主鎖に自由度を与えて、共重合体のガラス転移温度の上昇を緩和するという効果を発揮する。さらに、総炭素数が3~14であるアルキル基をエステル側鎖とすることによって、好ましくは単量体(a)におけるアルキル基の総炭素数よりも多くすることによって、共重合体の分子鎖内に官能基が取り込まれないようにし、官能基が有する作用効果を有効に発揮させることができるものである。上記効果、特に共重合体主鎖への適度な自由度の付与のためには、単量体(b)におけるアルキル基の総炭素数は3以上とする必要がある。また、総炭素数が14を超えるとエステル側鎖が長すぎて、側鎖末端の官能基が分子鎖内部に取り込まれる現象が生じたり、粘着性の低下を招くおそれがある。

【0017】このような単量体(b)の具体例としては、(メタ)アクリル酸3-カルボキシプロピルエステル、(メタ)アクリル酸4-カルボキシブチルエステル、(メタ)アクリル酸5-カルボキシペンチルエステル、(メタ)アクリル酸6-カルボキシヘキシルエステル、(メタ)アクリル酸3-ヒドロキシプロピルエステル、(メタ)アクリル酸2-メチル-3-ヒドロキシプロピルエステル、(メタ)アクリル酸4-ヒドロキシブチルエステル、(メタ)アクリル酸6-ヒドロキシヘキシルエステル、(メタ)アクリル酸8-ヒドロキシオクチルエステルなどが挙げられ、これらのうち一種もしくは二種以上併用して用いることができる。

【0018】上記単量体(b)は必須成分として全単量体中、0.05~80重量%、好ましくは0.05~70重量%の範囲で共重合される。0.05重量%に満たない場合は、単量体(b)に含まれる官能基の効果が充分に発揮できず、また、80重量%を超える場合には、単量体(a)の共重合量が少くなり、初期接着力などの粘着剤としての接着特性が低下するので好ましくない。なお、上記単量体(b)の共重合範囲は比較的広いものであるが、官能基を架橋点として作用させる場合には、上記範囲内で共重合量を少なくすることができる。しかしながら、官能基を架橋点ではなく得られる粘着剤の凝集力改善などを目的として作用させる場合には、共重合量を多くすることができる。従って、上記のような範囲となるのである。

【0019】さらに、本発明の粘着剤組成物において必須成分として共重合させる上記単量体(a)と単量体(b)は、下記の関係にあることが好ましい。

【0020】①単量体(a)および単量体(b)のアル

キル基が直鎖アルキル基である場合には、単量体（b）のアルキル基の炭素数が、単量体（a）のアルキル基の炭素数よりも1個少ないか、もしくは同数以上であること。

【0021】②単量体（a）および単量体（b）の少なくとも一方のアルキル基が分岐鎖アルキル基である場合には、単量体（b）の官能基を有するアルキル直鎖の炭素数が、単量体（a）のアルキル基の最も長いアルキル直鎖の炭素数よりも1個少ないか、もしくは同数以上であること。

【0022】つまり、単量体（a）と単量体（b）が上記①または②の関係を満足する場合には、単量体（b）の末端に存在する官能基は、長いメチレン鎖をスペーサとして側鎖にペンドティングしているので、共重合体の分子鎖内に取り込まれる官能基の量が少なくなり、極性化や架橋点として官能基が本来有する作用効果を有効に発揮することができる。

【0023】また、本発明の粘着剤組成物には、上記単量体（a）および（b）以外に、他の共重合性の単量体（c）を共重合させることができる。このような共重合性単量体（c）を用いることによって、得られる粘着剤組成物に対して用途に応じた所望の特性を付与することができ、例えば、さらに極性を高めたり、親水性を向上させたり、接着性を向上させたりすることができる。

【0024】このような共重合性の単量体（c）としては、具体的には（メタ）アクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、イタコン酸、クロトン酸、カルボキシエチル（メタ）アクリレートなどのカルボキシル基含有単量体、2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸などのスルホキシル基含有単量体、2-ヒドロキシエチルアクリロイルホスフェート、2-ヒドロキシプロピルアクリロイルホスフェートなどのホスホキシル基含有単量体、（メタ）アクリラミド、N-置換（メタ）アクリラミド、3-アクリロイルオキシプロピルアミド、4-アクリロイルオキシブチルアミド、5-アクリロイルオキシベンチルアミド、4-アクリロイルオキシヘキシルアミド、N-メチル-3-アクリロイルオキシプロピルアミド、N、N-ジメチル-3-アクリロイルオキシプロピルアミド、N-ビニル-2-ピロリドン、N-ビニルカルボン酸アミドなどのアミド系単量体、酢酸ビニル、ステレン、 $\alpha$ -メチルステレンなどのビニル系単量体、グリジル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、メチル（メタ）アクリレート、テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコール（メタ）アクリレート、1-アセトキシ-4-アクリロイルオキシベンタン、6-アクリロイルオキシエチルヘキサノエート、含フッ素（メタ）アクリレート、含ケイ素（メタ）アクリレートなどの官

能基含有（メタ）アクリレートなどが挙げられる。また、ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、（ポリ）エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、（ポリ）プロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ジベンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレートなどの内部架橋用の多官能性単量体や、ポリエステル（メタ）アクリレート、ウレタン（メタ）アクリレートなども用いることができる。

【0025】上記共重合性単量体（c）においても、本発明における単量体（a）と単量体（b）のような側鎖アルキル基の関係を有するように選択することによって、共重合性単量体（c）中の官能基が本来有する作用効果を最大限に発揮することができる。

【0026】上記共重合性単量体（c）は前記単量体（a）および単量体（b）の特性を阻害しないように、全単量体量の30重量%以下、好ましくは25重量%以下の範囲で一種もしくは二種以上を共重合することができる。

【0027】本発明の粘着剤組成物は前記単量体（a）および単量体（b）を必須成分とし、また必要に応じて単量体（c）も配合して共重合してなるものであり、その重合方法は特に限定されない。具体的には、溶液重合法や乳化重合法、塊状重合法、懸濁重合法などの公知の重合方法を採用することができ、無溶剤重合法である塊状重合法では反応の制御の点から紫外線などの放射線照射による重合操作を行うことが好ましい。また、上記重合において重合開始剤を用いるが、アゾ系、過酸化物系の熱重合開始剤やアセトフェノン系、ベンゾインエーテル系、ケタール系などの光重合開始剤などを用いることができる。

【0028】さらに、本発明の粘着剤組成物には、必要に応じてガラス繊維やガラスピース、金属粉末、無機粉末などの各種充填剤、天然樹脂類や合成樹脂類などの粘着付与樹脂、油脂類、界面活性剤、顔料、着色料などの各種添加剤を、共重合体100重量部当り200重量部以下の範囲で配合することができる。

【0029】上記本発明の粘着剤組成物は、各種プラスチックフィルムやシート、紙、織布、不織布、各種発泡体フィルムやシート、金属箔、またはこれらの積層体からなる支持体の少なくとも片面に、5~2000  $\mu\text{m}$ 程度の厚みで層状に形成して、粘着テープや粘着シートなどの粘着シート類とすることができる。なお、得られる本発明の粘着シート類は、支持体背面にシリコーン系樹脂やフッ素系樹脂などの公知の離型剤を塗布してロール状に巻回したり、形成された粘着剤層の露出表面に公知の離型剤を塗布したセパレータで被覆することができる。

【0030】さらに、本発明の粘着シート類における粘

着剤層は単量体（b）による架橋点付与や凝集力向上以外に、架橋処理を施すこともできる。架橋処理の方法としては、前記単量体（c）として例示した多官能性（メタ）アクリレートなどの内部架橋性の単量体を共重合する方法や、外部架橋剤としてメラミン樹脂やイソシアネート化合物、エポキシ化合物、アジリジン系化合物、過酸化物、金属キレート化合物などを共重合体に配合して加熱などの方法を施すことができる。さらに、上記架橋手段ではなく、電子線や紫外線などの活性光線を照射して架橋する架橋手段を採用することもできる。

【0031】上記架橋処理を施すことによって、本発明の粘着シート類における粘着剤層は内部凝集力が向上して優れた接着特性を發揮するのである。架橋の程度は用途に応じて適宜調整することができ、例えば接着用としては30～90%、再剥離用としては60%以上のゲル分率となるように調整することが好ましい。この場合のゲル分率とは、室温下、酢酸エチルに粘着剤層を1週間浸漬したのちに溶解しなかった粘着剤（残存分）の比率である。

#### 【0032】

【実施例】以下に本発明を実施例を用いて、さらに具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではなく、本発明の技術思想を逸脱しない範囲で種々の変形が可能である。なお、以下の文中で部とあるのは、重量部を意味する。

#### 【0033】実施例1

重合反応容器内に、酢酸エチル150部、アクリル酸n-ブチルエステル95部、アクリル酸5-カルボキシベンチルエステル5部、重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリル0.5部を投入し、不活性ガス雰囲気中で、60°Cにて4時間、続いて80°Cで2時間重合反応を行い、共重合体溶液（重合率99%）を調製した。

【0034】得られた共重合体溶液の固形分100部に対して、架橋剤としてのトリメチロールプロパン-トリレンジイソシアネート付加物5部を加え、本発明の粘着剤組成物の溶液を作製した。

【0035】この溶液を25μm厚のポリエステルフィルム上に乾燥後の厚みが50μmとなるように塗布し、120°Cで5分間加熱乾燥して、架橋された粘着剤層を有する粘着シートを作製した。

#### 【0036】実施例2

実施例1においてアクリル酸n-ブチルエステル75部、アクリル酸5-カルボキシベンチルエステル25部とした以外は、実施例1と同様にして共重合体溶液（重合率約99%）を調製し、さらに実施例1と同様に架橋剤を添加して粘着シートを作製した。

#### 【0037】実施例3

実施例1においてアクリル酸n-ブチルエステル40部、アクリル酸5-カルボキシベンチルエステル60部とした以外は、実施例1と同様にして共重合体溶液（重合率約99%）を調製し、さらに実施例1と同様に架橋剤を添加して粘着シートを作製した。

#### 【0038】比較例1

実施例1においてアクリル酸n-ブチルエステルを95部とし、アクリル酸5-カルボキシベンチルエステルの代わりにアクリル酸5部を用いた以外は、実施例1と同様にして共重合体溶液（重合率約99%）を調製し、さらに実施例1と同様に架橋剤を添加して粘着シートを作製した。

#### 【0039】比較例2

比較例1においてアクリル酸n-ブチルエステルを90部とし、アクリル酸10部を用いた以外は、比較例1と同様にして共重合体溶液（重合率約99%）を調製し、さらに比較例1と同様に架橋剤を添加して粘着シートを作製した。

#### 【0040】比較例3

比較例1においてアクリル酸n-ブチルエステルを75部とし、アクリル酸25部を用いた以外は、比較例1と同様にして共重合体溶液（重合率約99%）を調製し、さらに比較例1と同様に架橋剤を添加して粘着シートを作製した。

【0041】上記実施例1～3および比較例1～3にて得られた粘着シートについて下記特性を測定した。その結果を表1に示す。

【0042】<初期接着性>指触タックによって測定した。不良は指触によるタックがほとんどなく、仮固定（即時固定）ができない状態を示す。

【0043】<初期接着力>上記各実施例および比較例にて得た粘着シートを20mm幅に裁断し、これをサンドペーパー（#280）にて表面研磨したSUS-304板に貼り合わせ、2kg荷重のローラにて1往復させて圧着したのち20分間放置した。次いで、このサンプルをJIS-Z-0237に準じて、引張試験機を用いて300mm／分の剥離速度で180度剥離試験を行い、その接着力を測定した。

【0044】<経日接着力>上記初期接着力試験に用いたと同じサンプルを50°Cの恒温器内に1日保存したのち、初期接着力試験と同様の試験を行った。

<耐水性>前記初期接着力試験に用いたと同じサンプルを、室温水中に3日完漫漬したのち、引張試験機を用いて300mm／分の剥離速度で180度剥離試験を行い、その接着力を測定した。

#### 【0045】

【表1】

		初期接着性	初期接着力 (g/20mm幅)	経日接着力 (g/20mm幅)	耐水性 (g/20mm幅)
実施例	1	良好	900	1400	600
	2	良好	950	1500	600
	3	良好	900	2500	400
比較例	1	良好	700	1100	500
	2	不良	700	1500	400
	3	不良	—	3800	—

\*) 初期接着力がほとんどなかった。

【0046】上記表1から明らかなように、実施例品は初期接着性が良好であると共に、アクリル酸5-カルボキシペンチルエステルの共重合量が増加しても初期接着性の低下がない。一方、比較例品ではメチレンスペーサを有さないアクリル酸の共重合量が増加すると、初期接着性も初期接着力も劣るようになる。

【0047】また、50°Cで1日間の熟成を加えた経日接着力については、実施例品および比較例品の何れも上昇傾向を示し、比較例品も充分な接着力を発揮する。しかしながら、比較例品は初期接着性が充分ではないので仮固定ができず実用的なものではなかった。これは本発明における粘着剤組成物は凝集性向上と共に、悪化するガラス転移温度をメチレンスペーサが緩和しているものと考えられる。

【0048】しかしながら、耐水性試験については、実施例品であっても共重合成分の料が過剰量になると、徐々に実用特性のバランスがくずれてくる傾向を示した。

#### 【0049】実施例4

重合反応容器内に、酢酸エチル150部、アクリル酸n-ブチルエステル99.9部、アクリル酸6-ヒドロキシヘキシリエステル0.1部、重合開始剤としてのアソビスイソブチロニトリル0.5部を投入し、不活性ガス雰囲気中で、60°Cにて4時間、続いて80°Cで2時間重合反応を行い、共重合体溶液（重合率99%）を調製した。

【0050】得られた共重合体溶液の固形分100部に対して、架橋剤としてのトリメチロールプロパン-トリアレンジイソシアネート付加物0.1部を加え、本発明の粘着剤組成物の溶液を作製した。

【0051】この溶液を25μm厚のポリエステルフィルム上に乾燥後の厚みが50μmとなるように塗布し、120°Cで5分間加熱乾燥して、架橋された粘着剤層を有する粘着シートを作製した。また、同様にして別途剥離紙上に粘着剤層を形成した。

#### 【0052】実施例5

実施例4においてアクリル酸n-ブチルエステル99.8部、アクリル酸6-ヒドロキシヘキシリエステル0.2部とした以外は、実施例4と同様にして共重合体溶液（重合率約99%）を調製し、さらに実施例4と同様に

架橋剤を添加して粘着シートを作製した。

#### 【0053】実施例6

実施例4においてアクリル酸n-ブチルエステル99.5部、アクリル酸6-ヒドロキシヘキシリエステル0.5部とした以外は、実施例4と同様にして共重合体溶液（重合率約99%）を調製し、さらに実施例4と同様に架橋剤を添加して粘着シートを作製した。

#### 【0054】比較例4

実施例4においてアクリル酸6-ヒドロキシヘキシリエステルの代わりにアクリル酸2-ヒドロキシエチルエステルを用いた以外は、実施例4と同様にして共重合体溶液（重合率約99%）を調製し、さらに実施例4と同様に架橋剤を添加して粘着シートを作製した。

#### 【0055】比較例5

実施例5においてアクリル酸6-ヒドロキシヘキシリエステルの代わりにアクリル酸2-ヒドロキシエチルエステルを用いた以外は、実施例5と同様にして共重合体溶液（重合率約99%）を調製し、さらに実施例5と同様に架橋剤を添加して粘着シートを作製した。

#### 【0056】比較例6

実施例6においてアクリル酸6-ヒドロキシヘキシリエステルの代わりにアクリル酸2-ヒドロキシエチルエステルを用いた以外は、実施例6と同様にして共重合体溶液（重合率約99%）を調製し、さらに実施例6と同様に架橋剤を添加して粘着シートを作製した。

【0057】上記実施例4～6および比較例4～6にて得られた粘着シートについて下記特性を測定した。その結果を表2に示す。

【0058】<保持力>上記各実施例および比較例にて得た粘着シートを50°Cで7日間熟成したのち、20mm×10mmの面積でペークライト板上に貼り合わせ、2kg荷重のローラにて1往復させて圧着したのち20分間放置した。次いで、貼り合わせたシートの長手方向の端部に500gの荷重を吊下し、40°Cの雰囲気下で放置して粘着シートが落下するまでの時間を測定した。なお、1時間経過後も粘着シートが落下しなかった場合は、1時間経過後のズレ移動距離を測定した。

【0059】<ゲル分率>上記各実施例および比較例にて得た剥離紙上に形成した粘着剤層を50°Cで7日間熟

成したのち、その粘着剤層の一部分を  $2 \text{ cm}^2$  角に裁断し、 $0.2 \mu\text{m}$  の孔径を有するポリテトラフルオロエチレン多孔質膜からなる袋に入れて酢酸エチル中に 1 週間、室温下で浸漬した。予め、袋のみの重量を測定しておき、浸漬前の粘着剤層重量と浸漬後の乾燥重量を求め、粘着剤層中の未溶解分（ゲル分）の比率を測定した。

## 【0060】

【表2】

		保持力		ゲル分率
		落下時間	れ距離	
実施例	4	—	0.6 mm	50 %
	5	—	0.2 mm	70 %
	6	—	0.1 mm	85 %
比較例	4	8 分	—	0 %
	5	8 分	—	0 %
	6	—	—	30 %

【0061】上記表2から明らかなように、実施例品は少量のアクリル酸6-ヒドロキシヘキシルエステルの共重合でも充分に架橋反応が起こり、優れた接着特性（凝集性）を示す。一方、比較例品では化学量論的には導入量が多いはずのアクリル酸2-ヒドロキシエチルエステルを用いているが、架橋反応は実施例品と比べて充分に行われず、その結果、凝集力不足となる。

【0062】以上のように表1および表2の結果から、本発明品は単量体（b）におけるアルキル基がスペーサー的に作用して、末端の官能基は充分にその導入効果を発揮していることが明らかである。

		初期接着性	初期接着力 (g/20mm幅)	経日接着力 (g/20mm幅)	耐水性 (g/20mm幅)
実施例	10	良好	950	3100	450
	11	良好	1200	1100	600

## 【0070】

【発明の効果】以上のように、本発明の粘着剤組成物および該組成物を用いてなる粘着シート類は、特定の単量体の組合せによって、単量体中に存在する官能基が本来

## 【0063】実施例7～9

実施例7～9は実施例4～6に対応し、各実施例に用いるアクリル酸n-ブチルエステルをアクリル酸イソオクチルエステルに代えた以外は、全て各実施例と同様にして粘着シートを作製した。

【0064】実施例7～9にて得られた粘着シートについて上記と同様保持力およびゲル分率を測定し、その結果を表3に示した。

## 【0065】

【表3】

		保持力		ゲル分率
		落下時間	れ距離	
実施例	7	—	0.3 mm	67 %
	8	—	0.8 mm	50 %
	9	—	0.1 mm	78 %

## 【0066】実施例10

実施例3において用いるアクリル酸5-カルボキシペンチルエステルの量を5.5部とし、アクリル酸5部をさらに添加した以外は、実施例3と同様にして粘着シートを作製した。

## 【0067】実施例11

実施例2に架橋剤を添加しなかった以外は、実施例2と同様にして粘着シートを作製した。

【0068】実施例10および11にて得られた粘着シートについて前記と同様に初期接着性、初期接着力、経日接着力および耐水性を測定し、その結果を表4に示した。

## 【0069】

【表4】

		初期接着性	初期接着力 (g/20mm幅)	経日接着力 (g/20mm幅)	耐水性 (g/20mm幅)
実施例	10	良好	950	3100	450
	11	良好	1200	1100	600

有する作用効果を最大限有効に発揮させることができるものであり、従来のアクリル系粘着剤が有する欠点を解決した優れた凝集性や粘着性、接着性などの粘着特性を発揮するものである。

## フロントページの続き

(72) 発明者 小俣 哲夫

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東  
電工株式会社内

(72) 発明者 福崎 英一郎

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東  
電工株式会社内